



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Yoshiyuki TSUJI, et al.

GAU: 2631

SERIAL NO: 10/801,683

EXAMINER:

FILED: March 17, 2004

FOR: SILICA GLASS CRUCIBLE

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS  
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e):  
Application No. Date Filed
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

| <u>COUNTRY</u> | <u>APPLICATION NUMBER</u> | <u>MONTH/DAY/YEAR</u> |
|----------------|---------------------------|-----------------------|
| JAPAN          | 2003-092146               | March 28, 2003        |

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)  
☐ are submitted herewith  
☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.  
Norman F. Oblon

*Corwin Paul Umbach*

Corwin P. Umbach, Ph.D.  
Registration No. 40,211

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 05/03)

10/801,683  
BEST AVAILABLE COPY

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 3 年 3 月 2 8 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 0 9 2 1 4 6  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 3 - 0 9 2 1 4 6 ]

出 願 人  
Applicant(s): ジャパンスーパーコート株式会社

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2 0 0 4 年 5 月 1 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫

【書類名】 特許願

【整理番号】 JSQ0154

【提出日】 平成15年 3月28日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C03B 20/00

【発明者】

    【住所又は居所】 秋田県秋田市茨島5丁目14番3号 ジャパンスーパー  
                                クォーツ株式会社開発センター内

    【氏名】 辻 義行

【発明者】

    【住所又は居所】 秋田県秋田市茨島5丁目14番3号 ジャパンスーパー  
                                クォーツ株式会社開発センター内

    【氏名】 辻元 俊夫

【特許出願人】

    【識別番号】 592176044

    【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号

    【氏名又は名称】 ジャパンスーパークォーツ株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100088719

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 千葉 博史

    【連絡先】 03-5614-8061

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 070265

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 要約書 1

    【包括委任状番号】 9723341

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 石英ガラスルツボ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シリコン単結晶の引き上げに用いる石英ガラスルツボであって、少なくともルツボ壁部の外表面が、長さ  $200\mu\text{m}$  以下、幅  $30\mu\text{m}$  以下、深さ  $3\mu\text{m}$  以上～ $30\mu\text{m}$  以下の微小な溝によって覆われていることを特徴とする石英ガラスルツボ。

【請求項 2】 上記微細な溝がルツボ外表面の  $10\%$  以上存在する請求項 1 の石英ガラスルツボ。

【請求項 3】  $1500^{\circ}\text{C}$  におけるルツボ外表面のカーボンに対する滑り摩擦係数が  $0.6$  以上である請求項 1 または 2 の石英ガラスルツボ。

【請求項 4】 外表面をサンドブラスト処理してフッ酸エッチングを施すことによって、ルツボ外表面を上記微細な溝によって覆った請求項 1、2 または 3 の石英ガラスルツボ。

【請求項 5】 ルツボ外表面において、 $0.1\text{mm}$  以上の突起が単位面積あたり平均  $5\text{個}/\text{mm}^2$  以下である請求項 1～4 の何れかに記載する石英ガラスルツボ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、半導体などに使用するシリコン単結晶を熔融シリコンから引き上げる際に使用される石英ガラスルツボに関する。

【0002】

【従来技術と問題点】

近年、シリコンウエハーの大型化に伴って大口径の石英ルツボが使用されており、熔融量の増大や引上げ時間の長時間化によって石英ルツボに対する熱負荷が大きくなり、引き上げ中の石英ルツボの沈みこみが問題になっている。沈みこみを防止する方法として、ルツボの内表面や外表面を結晶化して強化した石英ルツボが知られている。

**【0003】**

例えば、特開平09-110590号には、ルツボ外表面に結晶化促進剤を塗布し、引き上げ中にルツボを結晶化させて強化することが記載されている。しかし、結晶化促進剤はシリコン単結晶にとって不純物であり、製造されたウエハーの電気的特性に悪影響を及ぼす可能性がある。また、特開平10-203893号には、ルツボ外表面に酸水素炎を吹き付けて結晶化ガラス層をルツボ外表面に形成することが記載されている。酸素雰囲気中で石英ガラスを軟化点以上まで過熱すると、冷却過程でクリストバライト結晶が析出する。しかし石英ガラスとクリストバライトでは熱膨張係数が大きく異なるので、この方法で形成されたクリストバライト層は剥離しやすく、実用化に適さない。

一方、特開2001-328831号には、ルツボ内表面全体をサンドブラスト等によって研磨し、この研磨面をさらに酸水素炎によって加熱処理して平滑化した石英ルツボが記載されている。この石英ルツボは内表面が気泡を含まず、純度が高いので単結晶化率を向上できる利点が指摘されているが、ルツボの沈み込みの問題は解決されていない。

**【0004】****【発明が解決しようとする課題】**

本発明は、従来の石英ガラスルツボにおける上記問題を解決したものであり、石英ガラスルツボを支えるカーボンサセプターとルツボの密着性が良く、シリコン単結晶の引き上げ工程でのルツボの沈み込みを効果的に防止した石英ガラスルツボを提供する。

**【0005】****【課題を解決するための手段】**

本発明は以下の構成からなる石英ガラスルツボが提供される。

(1) シリコン単結晶の引き上げに用いる石英ガラスルツボであって、少なくともルツボ壁部の外表面が、長さ200 $\mu$ m以下、幅30 $\mu$ m以下、深さ3 $\mu$ m以上～30 $\mu$ m以下の微小な溝によって覆われていることを特徴とする石英ガラスルツボ。

(2) 上記微細な溝がルツボ外表面の10%以上存在する上記(1)の石英ガラス

ルツボ。

(3) 1500℃におけるルツボ外表面のカーボンに対する滑り摩擦係数が0.6以上である上記(1)または(2)の石英ガラスルツボ。

(4) 外表面をサンドブラスト処理してフッ酸エッチングを施すことによって、ルツボ外表面を上記微細な溝によって覆った上記(1)、(2)または(3)の石英ガラスルツボ。

(5) ルツボ外表面において、0.1mm以上の突起が単位面積あたり平均5個/mm<sup>2</sup>以下である上記(1)～(4)の何れかに記載する石英ガラスルツボ。

#### 【0006】

##### 【具体的な説明】

シリコン単結晶に引き上げに用いる石英ガラスルツボは、回転モールドの内表面に堆積した石英粉末層を加熱熔融してガラス化する方法によって主に製造されている。この石英ガラスルツボはアーク炉で製造した直後は未熔融の石英粉末がルツボの外面に付着している。この未熔融石英粉末は高圧水で洗浄することによって除去されるが、その外用面には高さ約0.1mm程度の突起が多数存在している。このため、石英ルツボとカーボンサセプターとの密着性が低いことが判明した。

#### 【0007】

石英ルツボは高温下で軟化して強度が低下するので、通常、シリコン単結晶引き上げ時には、石英ルツボをカーボン製のサセプターに入れて補強した状態で用いられている。このカーボンサセプターとしては高温強度が高く、耐熱性や熱伝導率が高い黒鉛材が一般的に使用されている。なお、石英と黒鉛とは熱膨張率が大きく異なるために、加熱、冷却を繰り返し行っている間に加熱時には石英ルツボが軟化して黒鉛ルツボに密着し、一方、冷却時には黒鉛ルツボの収縮量が石英ルツボの収縮量に比べて大きくなるために石英ルツボから内圧を受けることとなり、サセプターの変形や割損などが生じる難点がある。そこで、この熱膨張率の差異による割損を防止するために、通常は分割型のサセプターが用いられている。ところが、近年の単結晶の大口径化に伴って大型化のカーボンサセプターが用いられるようになり、この重量増加による作業性の低下が指摘されている。そ

ここで、黒鉛材に比べて軽量でありながら比強度、比弾性率に優れ、また石英との熱膨張率の差異が少ない炭素繊維強化炭素材（C/C材）の使用が試みられている。本発明の石英ルツボはこのようなカーボンサセプターに対しても優れた密着性を有するものである。

#### 【0008】

本発明の石英ガラスルツボは、未熔融石英粉末を除去した後に、ルツボ外表面を表面処理して、少なくともルツボ壁部の外表面を、長さ200 $\mu$ m以下、幅30 $\mu$ m以下、深さ3 $\mu$ m以上～30 $\mu$ m以下の微小な溝によって覆った状態にすることによって、サセプターに対する密着性を高めたものである。微小溝が上記大きさの範囲であれば、サセプターに炭素繊維強化炭素材（C/C材）が用いられている場合にも炭素繊維が上記微小溝に係合しやすいので摩擦係数が大きくなり密着性を高めることができる。

#### 【0009】

この微小溝は少なくともルツボ壁部の外表面を覆い、ルツボ外表面全体の10%以上であるものが好ましい。この面積のルツボ外表面が上記微小溝に覆われていれば、シリコン単結晶引き上げ時の高温下、例えば、1500℃において、ルツボ外表面のカーボンに対する滑り摩擦係数が0.6以上の密着性の高い石英ルツボを得ることができる。

#### 【0010】

ルツボ外表面を覆う上記微小溝は、例えば、ルツボ外表面をサンドブラスト処理してフッ酸エッチングを施すことによって形成することができる。サンドブラスト処理は硬質粒子を高圧ガスとともに吹き付けて研削する方法であり、硬質粒子としては石英ガラスよりも硬度の高い材料として、珪素の炭化物や窒化物、アルミナ、ダイヤモンド、結晶質石英等が用いられる。なお、硬質粒子によるルツボを汚染するのを防ぐには結晶質石英を用いるのが良い。

#### 【0011】

サンドブラスト処理を行うには、石英ルツボを回転台に載せ、噴射ノズルをルツボ外表面の壁部に沿うように移動する。サンドブラスト処理は、ルツボ外表面の全体に施しても良いが、壁部の座屈を抑えるには壁部のみでよい。このサンド



ブラスト処理によってルツボ外表面の大きな突起が除去され、カーボンサセプターとの接触面積が増大し、摩擦係数が大きくなるのでルツボの座屈を抑えることができる。

#### 【0 0 1 2】

サンドブラスト処理の後、ルツボの内表面および外表面をフッ酸で洗浄する。内表面をフッ酸洗浄することによってルツボの内側に入り込んだ石英粉など洗い流す。また外表面をフッ酸洗浄することによって研削した石英粉を洗い落とし、さらに上記微小な溝を形成する。サンドブラストは硬質粒子を高圧ガスとともにルツボ外表面に吹き付けるので、大きな突起を取り除くと同時に、表面にマイクロクラックが生じる。このマイクロクラックが入ったルツボ外表面をフッ酸洗浄してエッチングすることにより上記微小溝が形成される。この微小溝はC/C材のカーボンサセプターを使用したときに特に有効である。C/C材を構成する炭素繊維の径は概ね $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度であり、炭素繊維が幅 $5\sim 30\text{ }\mu\text{m}$ の上記微小溝に絡み、摩擦係数をさらに増大させる。

#### 【0 0 1 3】

以上のようなサンドブラスト処理によってルツボ外表面を $0.1\text{ mm}$ 以上の突起が単位面積あたり平均 $5\text{ 個}/\text{mm}^2$ 以下にすることができ、フッ酸洗浄後の石英ルツボの外表面全体が $10\%$ 以上の上記微小溝で覆われていることによって、先に述べたように、シリコン単結晶引き上げ時の高温下、例えば、 $1500^\circ\text{C}$ において、ルツボ外表面のカーボンに対する滑り摩擦係数が $0.6$ 以上の密着性の高い石英ルツボを得ることができる。

#### 【0 0 1 4】

##### 【実施例】

石英ガラスルツボ（口径 $24\text{ インチ}$ ）の壁部（直胴部）にサンドブラスト処理を施した。市販の装置（厚地鉄工製AV-2EH型）を用い、噴射粒子にはルツボの純度を低下させないように粒径約 $200\text{ }\mu\text{m}$ の天然石英を用いた。また高圧ガスとして $6\text{ 気圧}$ の圧縮空気を用いた。噴射粒子の供給量は約 $1.7\text{ kg}/\text{分}$ である。このサンドブラスト処理の後にルツボ内外表面を $5\text{ 分間}$ フッ酸で洗浄し、サンドブラストによるコンタミを除去した。処理後、ルツボ外表面をSEMで観察したとこ

ろ、サンドブラスト処理した外表面の約 5 0 % が長さ 1 0 ~ 1 0 0  $\mu$ m、幅 1 0  $\mu$ m 程度の微小な溝によって覆われていた。

#### 【 0 0 1 5 】

このルツボから 5 0 mm 角のサンプル片を切り出して摩擦係数を測定した。摩擦係数の測定は引上げ時の条件、1 5 0 0  $^{\circ}$ C、A r ガス雰囲気下、2 0 torr の条件下で行った。幅 6 0 mm、長さ 3 0 0 mm のカーボン部材の一端を上下動するカーボン製の支持棒に取り付け、1 5 0 0  $^{\circ}$ C の温度下で支持棒を動かし、サンプル片が動いたときの傾斜角から摩擦係数を求めた。カーボン部材としては、黒鉛材と C / C 材を用いた。比較として、サンドブラスト処理していないサンプル片の摩擦係数も求めた。この結果を表 1 に示した。本発明の処理をしたものは黒鉛材および C / C 材の何れに対しても比較試料に比べて約 2 倍程度の大きな摩擦係数を有している。

#### 【 0 0 1 6 】

【表 1】

|             | 黒鉛での摩擦係数      | C / C 材での摩擦係数 |
|-------------|---------------|---------------|
| サンドブラスト処理   | 0. 8 ( 4 0 度) | 1. 2 ( 5 0 度) |
| サンドブラスト処理なし | 0. 4 ( 2 0 度) | 0. 5 ( 2 5 度) |

(注) カッコ内の数値は傾斜角

#### 【 0 0 1 7 】

#### 【発明の効果】

本発明の石英ガラスルツボは高温下においてもサセプターに対する密着性に優れているので、シリコン単結晶引き上げの使用時に座屈ないし沈み込みが抑えられ、単結晶化率を高めることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 シリコン単結晶引き上げの高温下での使用において、座屈や沈み込みを生じる虞のない石英ガラスルツボを提供する。

【手段】 シリコン単結晶の引き上げに用いる石英ガラスルツボであって、少なくともルツボ壁部の外表面が、長さ  $200\mu\text{m}$  以下、幅  $20\mu\text{m}$  以下、深さ  $3\mu\text{m}$  以上～ $20\mu\text{m}$  以下の微小な溝によって覆われていることを特徴とし、好ましくは、サンドブラスト処理してフッ酸エッチングを施すことによって形成された上記微細溝がルツボ外表面の  $10\%$  以上存在し、 $1500^{\circ}\text{C}$  におけるルツボ外表面のカーボンに対する滑り摩擦係数が  $0.6$  以上である石英ガラスルツボ。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 0 9 2 1 4 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 5 9 2 1 7 6 0 4 4 ]

1. 変更年月日

2 0 0 2 年 5 月 2 2 日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都千代田区丸の内 1 丁目 5 番 1 号

氏 名

ジャパンスーパーコート株式会社